

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-279353

(43)Date of publication of application : 20.10.1998

(51)Int.Cl.

C04B 35/49

H01G 4/12

(21)Application number : 09-079816

(71)Applicant : KYOCERA CORP

(22)Date of filing : 31.03.1997

(72)Inventor : HAMAYA TETSUZO

KOIZUMI SEIICHI

OOTA HITOSHI

(54) DIELECTRIC CERAMIC

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain dielectric ceramic having high reliability at high temp. and humidity by forming grains having a specified compsn. consisting of BaO, CaO, TiO<sub>2</sub> and ZrO<sub>2</sub> and a Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-contg. grain boundary phase.

SOLUTION: This dielectric ceramic consists of 100 pts.wt. grains having a compsn. represented by the formula [(Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)m(Ti<sub>1-y</sub>Zr<sub>y</sub>)]O<sub>3</sub> (where  $0.01 \leq x \leq 0.1$ ,  $0.15 \leq y \leq 0.25$  and  $0.99 \leq m \leq 1.02$ ) and 0.2-3.0 pts.wt. grain boundary forming glass consisting of 2-50 mol% Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 20-88 mol% SiO<sub>2</sub> and 10-60 mol% Li<sub>2</sub>O or B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> or further contains 0.1-0.3 pt.wt. MnO<sub>2</sub>. It is obtd. by mixing powder of a solid soln. represented by the formula [(Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)m(Ti<sub>1-y</sub>Zr<sub>y</sub>)]O<sub>3</sub> with powder of the glass and firing the resultant mixture at 1,050-1,250°C for 0.5-5 hr in an atmosphere of nitrogen.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

30.03.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

**\* NOTICES \***

**Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**


---

[Claim(s)]

[Claim 1] Empirical formula  $\{(Ba_{1-x}Ca_x)_m(Ti_{1-y}Zr_y)\}$  The crystal grain child to whom it is expressed with O<sub>3</sub> (however,  $0.01 \leq x \leq 0.10$ ,  $0.15 \leq y \leq 0.25$ ,  $0.99 \leq m \leq 1.02$ ), and Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Dielectric porcelain characterized by consisting of a grain boundary phase to contain.

[Claim 2] Empirical formula  $\{(Ba_{1-x}Ca_x)_m(Ti_{1-y}Zr_y)\}$  The principal component expressed with O<sub>3</sub> (however,  $0.01 \leq x \leq 0.10$ ,  $0.15 \leq y \leq 0.25$ ,  $0.99 \leq m \leq 1.02$ ), this principal component 100 weight section -- receiving -- Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> SiO<sub>2</sub>, Li<sub>2</sub>O, or B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> from, while carrying out 0.2-3.0 weight section content of the becoming glass component Said glass component is Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. SiO<sub>2</sub> Li<sub>2</sub>O or B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> In 3 component presentation Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 2-50-mol % and SiO<sub>2</sub> 20-88-mol % and Li<sub>2</sub>O or B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Dielectric porcelain according to claim 1 characterized by consisting of 10-60-mol %.

[Claim 3] It is MnO<sub>2</sub> further to the principal component 100 weight section. Dielectric porcelain according to claim 2 characterized by carrying out 0.1-0.3 weight section content.

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

## [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the dielectric porcelain of the stacked capacitor which can use a base-metal ingredient, for example, nickel etc., for an internal electrode especially about dielectric porcelain.

[0002]

[Description of the Prior Art] Conventionally, a stacked capacitor carries out the laminating of the green sheet of two or more sheets which printed conductive paste to the green sheet which consists of a predetermined dielectric porcelain constituent, and printed this conductive paste, calcinates a green sheet and an internal electrode in one, and is formed.

[0003] And what is indicated by JP,57-42588,B is conventionally known as a nonreducible dielectric porcelain constituent which can use base metal as an internal electrode. The dielectric porcelain constituent indicated by this official report is an empirical formula  $[(Ba_{1-x-y}Ca_xSr_y)O]_mTiO_2$ . It is expressed.

[0004] However, when the burning temperature of what can suppress the reduction reaction of the dielectric materials generated at the time of baking in the dielectric porcelain constituent indicated by JP,57-42588,B exceeded 1300 degrees C and nickel was used for the internal electrode of a stacked capacitor, the electrode formation by which nickel particle showed the agglutination reaction and was stabilized was difficult. Moreover, nickel particle showed the diffusion reaction at coincidence to dielectric porcelain, and there was a trouble of degrading an insulation resistance value. Then, what is indicated by JP,6-14496,B and JP,4-367559,A is known in recent years as a dielectric porcelain constituent in which low-temperature baking is possible.

[0005] The thing which comes to calcinate the mixture of the fundamental component expressed with  $\{(Ba_{1-x}Ca_x)O\}_m(Ti_{1-y-z}Zr_yR_z)O_{2-z/2}$  (R is rare earth elements, such as Y) and the addition component which consists of  $SiO_2$ ,  $Li_2O$ , and  $MO$  ( $MO$  is  $BaO$  etc.) is indicated by JP,6-14496,B. Temporary quenching of the fundamental component is carried out to this official report at 1200 degrees C, temporary quenching of the addition component is carried out to it at 1000 degrees C, the temporary-quenching powder of a fundamental component and an addition component is mixed, a slurry is formed with this mixed powder, it fabricates in a predetermined configuration, and the sintered compact is obtained by calcinating at 1150 degrees C.

[0006] Moreover, the dielectric porcelain constituent expressed with  $m(Ti_{1-y}Zr_y)_nO_3+aM_1+bM_2+cM_3$  (the compound of Si and  $M_3$  are  $[M_1]$  the compound of Y for compounds, such as Mn, and  $M_2$ ) to JP,4-367559,A ( $Ba_{1-x}Ca_x$ ) is indicated. this official report --  $BaCO_3$ ,  $CaCO_3$ ,  $TiO_2$ ,  $ZrO_2$ ,  $SiO_2$ , and  $Y_2O_3$  etc. -- powder is mixed, temporary quenching of this powder is carried out at 1050-1240 degrees C, a Plastic solid is produced using this temporary-quenching powder, and the sintered compact is obtained by calcinating at 800-1100 degrees C.

[0007] In these dielectric porcelain constituents, even if it calcinates by the reducing atmosphere, porcelain is not returned, but burning temperature can be made into 1150 degrees C or less, and low-temperature baking is possible.

[0008]

[The technical problem which invention will solve and to carry out] However, the above-mentioned dielectric porcelain had the problem that the dependability in high-humidity/temperature was low. That is, although small high capacity-ization was demanded in recent years for this reason, when lamination of the dielectric layer in a laminating mold ceramic capacitor was carried out, there was a problem that poor dependability occurred frequently by the fall of insulation resistance etc.

[0009] This invention is thought out in view of an above-mentioned technical problem, and while being able to calcinate the purpose below 1250 degrees C according to reducing atmosphere and excelling also in fundamental properties, such as specific inductive capacity, dielectric loss, and an insulation resistance value, moreover, it aims at offering the dielectric porcelain which can improve and can make dependability in high-humidity/temperature long lasting.

[0010]

[Means for Solving the Problem] By making it mainly exist in a grain boundary rather than making the rare earth elements added dissolve in a crystal phase like JP,6-14496,B and JP,4-367559,A, as a result of examining the above-mentioned trouble wholeheartedly, this invention person etc. set, when lamination of the dielectric layer of a laminating mold ceramic capacitor was carried out, he did the knowledge of the ability to improve the dependability in high-humidity/temperature, and resulted in this invention.

[0011] That is, the dielectric porcelain of this invention is the crystal grain child to whom it is expressed with  $\{(Ba_{1-x}Cax) \text{ empirical formula } m (Ti_{1-y}Zry)\} O_3$  (however,  $0.01 \leq x \leq 0.10$ ,  $0.15 \leq y \leq 0.25$ ,  $0.99 \leq m \leq 1.02$ ), and  $Y_2 O_3$ . It consists of a grain boundary phase to contain.

[0012] The principal component as which the dielectric porcelain of this invention is expressed in  $\{(Ba_{1-x}Cax) \text{ empirical formula } m (Ti_{1-y}Zry)\} O_3$  (however,  $0.01 \leq x \leq 0.10$ ,  $0.15 \leq y \leq 0.25$ ,  $0.99 \leq m \leq 1.02$ ), this principal component 100 weight section -- receiving --  $Y_2 O_3$   $SiO_2$   $Li_2 O$  or  $B_2 O_3$  from, while carrying out 0.2-3.0 weight section content of the becoming glass component Said glass component is  $Y_2 O_3$ .  $SiO_2$   $Li_2 O$  or  $B_2 O_3$  It sets to 3 component presentation and is  $Y_2 O_3$ . 2-50-mol % and  $SiO_2$  20-88-mol % and  $Li_2 O$  or  $B_2 O_3$  It is desirable to consist of 10-60-mol %. Moreover, it is  $MnO_2$  further to the principal component 100 weight section. It is desirable to carry out 0.1-0.3 weight section content.

[0013]

[Function] With the dielectric porcelain of this invention, even if it uses for the internal electrode of a laminating ceramic capacitor the alloy which uses base metal, for example, nickel, and nickel as a principal component, the laminating ceramic capacitor which nickel particle did not show an agglutination reaction since baking processing was carried out at low temperature, or nickel particle did not show a diffusion reaction in the dielectric, and was excellent in fundamental properties, such as a dielectric constant, dielectric loss, and an insulation resistance value, is producible.

[0014] And as described above, it is at JP,6-14496,B, Temporary quenching of the fundamental component which consists of  $\{(Ba_{1-x}Cax) O\} m (Ti_{1-y-z}Zry Rz) O_{2-z/2}$  (R is rare earth elements, such as Y) is carried out at 1200 degrees C. Temporary quenching of the addition component which consists of  $SiO_2$ ,  $Li_2 O$ , and  $MO$  ( $MO$  is  $BaO$  etc.) is carried out at 1000 degrees C. Since the sintered compact was produced by mixing the temporary-quenching powder of a fundamental component and an addition component, forming a slurry with this mixed powder, fabricating in a predetermined configuration, and calcinating at 1150 degrees C, It is thought that Y is dissolving during the main crystal, and although dielectric characteristics are good, it is easy to generate the poor dependability in the elevated-temperature load test at the time of producing a thin layer capacitor.

[0015] moreover -- JP,4-367559,A -- the same --  $BaCO_3$ ,  $CaCO_3$ ,  $TiO_2$ ,  $ZrO_2$ ,  $SiO_2$ , and  $Y_2 O_3$  etc. -- it is thought that Y is dissolving during the main crystal, and since powder was mixed and temporary quenching of this powder was carried out at 1050-1240 degrees C, as described above, it is easy to generate poor dependability.

[0016] this invention person etc. could reduce the poor dependability in the elevated-temperature load test at the time of carrying out lamination, did the knowledge of the ability to do that it is long lasting, and resulted in this invention while he could improve dielectric characteristics by making Y added in order to improve dielectric characteristics mainly exist in the grain boundary of the main crystal phase as glass.

[0017]  $SiO_2$  and  $Li_2 CO_3$  in order to make Y mainly exist in a grain boundary in this invention And  $Y_2 O_3$  Powder was mixed, this was fused at 1200-1400 degrees C, this melt was supplied in cold water, the glass caret was produced, this glass caret was ground, and it used as a glass component. Such a glass component and a principal component are mixed, and if it calcinates at the temperature of 1250 degrees C or less and dielectric porcelain is produced, the dielectric porcelain with which Y mainly exists in a grain boundary as glass will be obtained. In this invention, when Y mainly exists in a grain boundary in this way, when lamination is carried out, dependability improves and reinforcement can be attained.

[0018]

[Embodiment of the Invention] The dielectric porcelain of this invention is [ the crystal grain child to whom it is expressed with  $\{(Ba_{1-x}Cax) \text{ empirical formula } m (Ti_{1-y}Zry)\} O_3$  (however,  $0.01 \leq x \leq 0.10$ ,  $0.15 \leq y \leq 0.25$ ,  $0.99 \leq m \leq 1.02$ ), and ]  $Y_2 O_3$  at least. It consists of a grain boundary to contain.

[0019] Here, a crystal grain child is expressed as  $\{(Ba_{1-x}Cax) \text{ empirical formula } m (Ti_{1-y}Zry)\} O_3$  (however,  $0.01 \leq x \leq 0.10$ ,  $0.15 \leq y \leq 0.25$ ,  $0.99 \leq m \leq 1.02$ ).

[0020] In this empirical formula, although x expresses calcium atomic number, this calcium acts as an element which raises an insulation resistance value while acting as a depressor which mainly carries out flattening of the temperature characteristic. When x becomes less than 0.01, an insulation resistance value will be less than  $1 \times 10^9$  ohms, and if x exceeds 0.10, specific inductive capacity cannot be less than 8000, and it can be satisfied with neither of the cases of the

basic property as a laminating ceramic capacitor. Therefore, the value of  $x$  has the desirable range of  $0.01 \leq x \leq 0.10$ . [0021] In said empirical formula, although  $y$  expresses the atomic number of Zr, this Zr acts as a shifter which mainly moves the Curie point to a low temperature side. If dielectric loss will exceed 5.0% if  $y$  becomes less than 0.15, and  $y$  exceeds 0.25, specific inductive capacity cannot be less than 8000, and it can be satisfied with neither of the cases of the basic property as a laminating ceramic capacitor. Therefore, the value of  $y$  has the desirable range of  $0.15 \leq y \leq 0.25$ . [0022] When  $m$  becomes less than 0.99 in said empirical formula, an insulation resistance value is  $1 \times 10^9$ . If it becomes under  $\omega$  and  $m$  exceeds 1.02, a degree of sintering will fall and a precise sintered compact will not be obtained. Therefore, the range of  $m$  of  $0.99 \leq m \leq 1.02$  is desirable.

[0023] And the dielectric porcelain of this invention consists of a crystal grain child to whom it is expressed with the above-mentioned empirical formula, and a grain boundary containing Y. A different point from the conventional dielectric porcelain is in the point that Y exists in a grain boundary. Thus, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Without degrading the dielectric characteristics of the main crystal phase by existing in a grain boundary, the poor dependability at the time of carrying out lamination can be reduced, and it can do that it is long lasting.

[0024] The presentation of the dielectric porcelain of this invention is the above-mentioned  $\{(Ba_{1-x}Ca_x) \text{ empirical formula } m(Ti_{1-y}Zr_y)\} O_3$ . The principal component expressed with  $(0.01 \leq x \leq 0.10, 0.15 \leq y \leq 0.25, 0.99 \leq m \leq 1.02)$ , [ however, ] this principal component 100 weight section -- receiving -- SiO<sub>2</sub> and Y -- 2O<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>O, or B-2 O<sub>3</sub> from, while carrying out 0.2-3.0 weight section content of the becoming glass component A glass component is SiO<sub>2</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>O, or B-2 O<sub>3</sub>. It sets to 3 component presentation and is SiO<sub>2</sub>. 20-88-mol %, Li<sub>2</sub>O, or B-2 O<sub>3</sub> 10-60-mol % and Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> It consists of 2-50-mol %.

[0025] Here, it is SiO<sub>2</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>O, or B-2 O<sub>3</sub> to the principal component 100 weight section. Having added the included glass component 0.2 to 3.0% of the weight, if a glass component becomes less than 0.2 % of the weight, a degree of sintering will fall and a precise sintered compact will not be obtained. Moreover, when 3.0 % of the weight is exceeded, an insulation resistance value is  $1 \times 10^9$ . It will be less than  $\omega$  and the basic property as a laminating ceramic capacitor cannot be satisfied.

[0026] This glass component is SiO<sub>2</sub>, Li<sub>2</sub>O or B-2 O<sub>3</sub>, and Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. It sets to 3 component presentation and is SiO<sub>2</sub>. 20-88-mol % and Li<sub>2</sub>O or B-2 O<sub>3</sub> 10-60-mol % and Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> It consists of 2-50-mol %. SiO<sub>2</sub>, Li<sub>2</sub>O or B-2 O<sub>3</sub>, and Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> If an amount separates from the above-mentioned range, an electrical property and a degree of sintering will fall.

[0027] Furthermore, it is MnO<sub>2</sub> to the principal component 100 weight section. It is desirable to carry out 0.1-0.3 weight section content. This is because Mn has the operation which raises a degree of sintering and an insulation resistance value, and specific inductive capacity cannot fall and it cannot be satisfied with under the 0.1 weight sections of the basic property as a laminating ceramic capacitor, if the improvement effectiveness in a degree of sintering is small and exceeds the 0.3 weight sections.

[0028] The dielectric porcelain of this invention is the following, and is made and produced. First, the solid-solution powder expressed with  $\{(Ba_{1-x}Ca_x) \text{ empirical formula } m(Ti_{1-y}Zr_y)\} O_3$  (however,  $0.01 \leq x \leq 0.10, 0.15 \leq y \leq 0.25, 0.99 \leq m \leq 1.02$ ) is produced as principal component powder. The same property is acquired whichever the process of a solid phase technique or a wet synthesis method is used for this solid-solution powder.

[0029] Moreover, they are SiO<sub>2</sub> and Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> about glass component powder. Or B-2 O<sub>3</sub> and Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> It mixes so that it may become the presentation which described powder above, this is fused at 1200-1400 degrees C, this melt is supplied in cold water, a glass caret is produced, and this glass caret is ground and produced.

[0030] And the dielectric porcelain of this invention is obtained by carrying out 0.2-3.0 weight section addition, mixing to the principal component powder 100 weight section, and calcinating glass component powder at the temperature of 1050-1250 degrees C in nitrogen-gas-atmosphere mind or reducing atmosphere for 0.5 to 5 hours. Thus, apart from principal component powder, it is Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. By making it add as a glass component, it is Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. It will mainly exist in a grain boundary as glass, when lamination is carried out, dependability improves, and reinforcement can be attained.

[0031] In addition, SiO<sub>2</sub> It may exist in a grain boundary as glass, and a part of Ba in a crystal grain child and calcium may exist in a grain boundary as glass. Moreover, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and SiO<sub>2</sub> It may deposit as a crystal phase in a grain boundary, and is MnO<sub>2</sub>. It exists in a grain boundary.

[0032] The laminating mold ceramic capacitor using the dielectric porcelain of this invention consists of a dielectric layer which consists of dielectric porcelain and a body of a capacitor in which an internal electrode comes to carry out a laminating by turns, and the 1st terminal electrode formed in the both ends of this body of a capacitor and the 2nd terminal electrode.

[0033] An adjoining internal electrode draws an internal electrode by turns to said end face which counters, it connects with the 1st terminal electrode or the 2nd terminal electrode, and it is constituted. This internal electrode consists of an ingredient which used nickel of base metal as the principal component.

[0034] Such a laminating mold ceramic capacitor carries out specified quantity addition of the above-mentioned principal component powder and the above-mentioned glass component powder, and is MnO<sub>2</sub> by request further. Powder is added, wet grinding is carried out with a ball mill, an organic vehicle is added, homogeneity mixing is performed, and tape forming is performed by the doctor blade method. Then, a tape is cut out in predetermined magnitude and it considers as a green sheet.

[0035] next, the conductor which serves as an internal electrode on the above-mentioned green sheet by screen-stencil in the conductive paste which carried out homogeneity mixing of nickel powder and the organic vehicle -- the film is formed.

[0036] thus, the conductor used as an internal electrode -- in consideration of the internal electrode derivation direction, the laminating of the green sheet with which the film was formed is carried out, and it sticks by pressure and unifies.

[0037] And the Green chip which is not calcinated [ which cut the green sheet layered product and was cut separately ] was calcinated at 1050-1250 degrees C according to the reducing atmosphere, and Cu paste was applied as a paste for external electrodes, it could be burned at 800-900 degrees C in nitrogen-gas-atmosphere mind, and the external electrode was formed.

[0038] An above-mentioned laminating mold ceramic capacitor can satisfy the electric property of a laminating mold ceramic capacitor, and can improve dependability also in an elevated-temperature load test further while especially burning temperature suppresses the agglutination reaction of 1250 degrees C or less and nickel particle, a precise sintered compact is moreover obtained, and it suppresses that nickel particle is spread in dielectric porcelain and can form nickel internal electrode in stability, when base-metal ingredients, such as nickel, are used for an internal electrode.

[0039]

[Example] as a start raw material -- BaCO<sub>3</sub>, CaCO<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub>, and ZrO<sub>2</sub> it becomes the presentation which shows powder in Table 1 -- as -- weighing capacity -- carrying out -- ZrO<sub>2</sub> the ball mill using a ball -- a wet process -- carrying out -- after desiccation and the inside of atmospheric air -- 1200 degrees C -- 2-hour temporary quenching treatment -- carrying out -- further -- wet grinding -- it dried and principal component powder was produced.

[0040] Next, they are SiO<sub>2</sub> and Li<sub>2</sub> CO<sub>3</sub> as a glass component. Or B<sub>2</sub> O<sub>3</sub> and Y<sub>2</sub> O<sub>3</sub> Specified quantity weighing capacity was carried out so that it might become the glass presentation of Table 1, and it blended dryly for 1 hour. Then, mixed powder is put into a platinum crucible and melting was carried out at 1300 degrees C in atmospheric air, and it began to pass in cold water and considered as the glass caret. Isopropyl alcohol (IPA) was added to this caret, and with the above-mentioned ball mill, wet grinding was carried out, it dried, and glass component powder was produced.

[0041] Then, only the amount which shows glass component powder in Table 1 to the principal component powder 100 weight section as shown in Table 1 is added, and it is MnO<sub>2</sub>. Only the amount which shows powder in Table 1 was added, wet grinding was carried out with the above-mentioned ball mill, the organic vehicle was added, tape molding was performed so that it might become the thickness of 15 micrometers with a doctor blade method, the tape was cut out in predetermined magnitude after that, and the green sheet was produced.

[0042] Homogeneity mixing of nickel powder and the organic vehicle is carried out, the conductive paste which forms an internal electrode is produced, and this conductive paste is applied on the above-mentioned green sheet by screen-stencil.

[0043] The laminating of the 11 sheets was carried out for the green sheet with which the conductive paste was applied, the laminating of every ten above-mentioned green sheets of this layered product with which the conductive paste is not applied up and down was carried out, respectively, and after sticking by pressure and unifying and producing a green sheet layered product, the Green chip which is not calcinated [ which cut this and was cut separately ] was calcinated for 2 hours at the temperature shown in Table 2 according to a reducing atmosphere.

[0044] Then, as a paste for external electrodes, homogeneity mixing was carried out, Cu powder and an organic vehicle were produced, this paste was applied, it could be burned at 900 degrees C in nitrogen-gas-atmosphere mind, the external electrode was formed, and the stacked capacitor was produced.

[0045] the produced stacked capacitor -- the thickness of a dielectric layer -- 10 micrometers and an effective dielectric layer -- ten layers and the effective electrode surface product of an internal electrode -- 3.0mm<sup>2</sup> it was .

[0046] The property of this stacked capacitor was inputted with the base temperature of 25 degrees C, the signal of the frequency of 1kHz and measurement electrical-potential-difference 1.0Vrms was inputted with the digital LCR meter (4274made from YHP A), and electrostatic capacity and dielectric loss tandelta were measured. Specific-inductive-capacity epsilon of dielectric porcelain was computed in consideration of the sample dimension and electrostatic capacity of dielectric porcelain of a stacked capacitor. In addition, the insulation resistance value carried out the seal of approval of the direct current voltage of 16V to the laminating mold ceramic capacitor for 1 minute, and made it the

value.

[0047] As evaluation, in order to create the small capacitor of a high dielectric constant, specific-inductive-capacity  $\epsilon$  is an important property, and made the thing exceeding 8000 good. Dielectric loss  $\tan\delta$  is an important property, in order to realize thin film-ization of a dielectric green sheet and to create the small capacitor of a high dielectric constant, and it made 5.0% or less good. An insulation resistance value is  $1 \times 10^9$ . Fitness more than of omega was carried out. Moreover, these characteristic values were made into the value which averaged  $n=10$  of a ceramic capacitor.

[0048] Moreover, the elevated-temperature load life of a stacked capacitor was measured by holding in the impression condition of the direct current voltage of 64V at 150 degrees C. This elevated-temperature load life was performed about 300 stacked capacitors, and was evaluated by measuring time amount until it results short from impression initiation of the capacitor which short-circuited first. It becomes especially important [ life ], in case an elevated-temperature load life carries out lamination of the dielectric layer, and time amount until it results short from impression initiation used 50 hours or more as the excellent article. These results were indicated to Table 2.

[0049]

[Table 1]

試料 No.	主成分			添加量 重量部	ガラス成分(mol%)			MnO <sub>2</sub> 重量部
	x	y	m		SiO <sub>2</sub>	Li <sub>2</sub> O B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
* 1	0.05	0.20	0.980	1.0	60	Li 20	20	0.20
2	0.05	0.20	0.990	1.0	60	Li 20	20	0.20
3	0.05	0.20	1.000	1.0	60	Li 20	20	0.20
4	0.05	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
5	0.05	0.20	1.020	1.0	60	Li 20	20	0.20
* 6	0.05	0.20	1.030	1.0	60	Li 20	20	0.20
* 7	0	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
8	0.01	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
9	0.03	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
10	0.08	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
11	0.10	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
*12	0.12	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
*13	0.05	0.125	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
14	0.05	0.150	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
15	0.05	0.175	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
16	0.05	0.225	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
17	0.05	0.250	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
*18	0.05	0.275	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
19	0.05	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.10
20	0.05	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.30
21	0.05	0.20	1.010	0.2	60	Li 20	20	0.20
22	0.05	0.20	1.010	0.5	60	Li 20	20	0.20
23	0.05	0.20	1.010	2.0	60	Li 20	20	0.20
24	0.05	0.20	1.010	3.0	60	Li 20	20	0.20
*25	0.05	0.20	1.010	1.0	100	Li 0	0	0.20
*26	0.05	0.20	1.010	1.0	90	Li 10	0	0.20
*27	0.05	0.20	1.010	1.0	40	Li 60	0	0.20
28	0.05	0.20	1.010	1.0	38	Li 60	2	0.20
29	0.05	0.20	1.010	1.0	40	Li 40	20	0.20
30	0.05	0.20	1.010	1.0	20	Li 60	20	0.20
31	0.05	0.20	1.010	1.0	60	Li 10	30	0.20
32	0.05	0.20	1.010	1.0	40	Li 10	50	0.20
33	0.05	0.20	1.010	1.0	20	Li 30	50	0.20
34	0.05	0.20	1.010	1.0	88	Li 10	2	0.20
35	0.05	0.20	1.010	1.0	60	B 20	20	0.20
36	0.05	0.20	1.010	1.0	40	B 40	20	0.20
37	0.05	0.20	1.010	1.0	20	B 60	20	0.20

\*印は本発明の範囲外の試料を示す。

[0050]

[Table 2]



試料 No	焼成温度 ℃	比誘電率	誘電損失 %	絶縁抵抗 $\times 10^9 \Omega$	高温負荷試験 (時間)
* 1	1150	19200	7.3	<1.0	—
2	1150	15800	4.3	2.8	68
3	1200	14200	3.5	5.1	75
4	1200	13800	3.2	8.6	82
5	1250	10500	1.8	8.8	57
* 6	1250	緻密な焼結体が得られず			—
* 7	1150	18800	2.8	<1.0	—
8	1150	17500	3.1	2.6	77
9	1200	15300	2.9	3.1	66
10	1200	12600	3.5	9.1	124
11	1250	9200	3.7	11.3	108
*12	1250	7600	4.1	12.1	—
*13	1200	12700	6.5	8.6	—
14	1200	14800	4.5	7.5	75
15	1200	11200	3.9	8.2	92
16	1200	10300	2.1	7.8	81
17	1250	8200	1.6	8.6	63
*18	1250	6700	1.2	8.5	—
19	1200	15800	4.1	8.5	52
20	1200	10500	2.1	5.2	91
21	1250	8700	2.8	12.3	176
22	1200	14700	3.3	9.8	146
23	1200	10500	4.3	5.1	66
24	1150	8800	4.8	2.3	51
*25	1150	13000	7.8	<1.0	—
*26	1200	14500	7.5	<1.0	—
*27	1250	7700	4.3	2.1	—
28	1200	8800	4.2	3.7	57
29	1200	14500	3.4	7.1	61
30	1250	10200	2.9	7.3	52
31	1200	11500	3.5	6.8	92
32	1250	9600	2.8	4.3	82
33	1200	8800	3.1	4.8	97
34	1200	13800	4.1	4.7	76
35	1200	14500	3.1	8.1	157
36	1200	13200	3.2	7.6	121
37	1200	8400	2.8	6.1	81

\*印は本発明の範囲外の試料を示す。

[0051] About the sample of this invention, when it gazed at the organization by 50,000 times with the transmission electron microscope (TEM), it consisted of a crystal grain child and a grain boundary, and when elemental analysis was performed about the grain boundary with the crystal grain child, Ba, calcium, Ti, and Zr were detected to the crystal grain child, and Y, Mn, and Si were detected in the grain boundary.

[0052] By sample numbers 1-6, he can understand an operation of the range of the m value in a fundamental component. When m is 0.98 like a sample number 1, an insulation resistance value is  $1 \times 10^9$ . It will become the following. Moreover, when m is 1.03 like a sample number 6, even if it calcinates at 1250 degrees C, a precise sintered compact is not obtained. The value of m serves as the range of  $0.99 \leq m \leq 1.02$  from this.

[0053] Next, he can understand an operation of the range of x values of a multiple oxide by sample numbers 7-12. As shown in a sample number 7, when x is 0, an insulation resistance value is  $1 \times 10^9$ . It will become the following.

[0054] Moreover, if the value of x exceeds 0.1 like a sample number 12, specific inductive capacity will be less than 7600 and 8000. The value of x is set to  $0.01 \leq x \leq 0.10$  from this.

[0055] Next, he can understand an operation of the range of y value of a multiple oxide by sample numbers 13-18. Dielectric loss will become 6.5% when y is 0.125, as shown in a sample number 13. Moreover, when y is 0.275 like a sample number 18, specific inductive capacity will be less than 6700 and 8000. The value of y serves as the range of  $0.15 \leq y \leq 0.25$  from this.

[0056] Next, he can understand an operation of the range of the addition of a glass component by sample numbers 21-24. When an addition controls to 0.2 - 3.0% of the weight, a precise sintered compact is obtained and other properties are also stabilized. SiO<sub>2</sub> which constitutes a glass component, Li<sub>2</sub> O or B<sub>2</sub> O<sub>3</sub>, and Y<sub>2</sub> O<sub>3</sub> He can understand the operation by sample numbers 25-37 about mol%.



[0057] As mentioned above, it can calcinate below 1250 degrees C from an example, and, for 8000 or more and dielectric loss, 5.0% or less and an insulation resistance value are [ specific inductive capacity ]  $1 \times 10^9$ . In order to consider as the above dielectric porcelain constituent, it is,  $\text{SiO}_2$  of x of a fundamental component, y and m, and a glass component,  $\text{Li}_2\text{O}$  or  $\text{B}_2\text{O}_3$ , and  $\text{Y}_2\text{O}_3$  Mol%, weight [ of the glass component ] %, and also  $\text{MnO}_2$  Weight % will be controlled strictly and it will be attained.

[0058] And by the sample of this invention, time amount until it results short from impression initiation of the capacitor which short-circuited first in the elevated-temperature load life held in the impression condition of the direct current voltage of 64V at 150 degrees C showed 50 hours or more and the outstanding property.

[0059] In addition, the invention-in-this-application person etc. produced the laminating ceramic capacitor using the dielectric porcelain indicated by JP,6-14496,B. That is, the principal component powder which consists of temporary-quenching powder expressed with  $\{(\text{Ba}_{0.95}\text{Ca}_{0.05})\text{O}\}1.005(\text{Ti}_{0.800}\text{Zr}_{0.196}\text{Y}_{0.004})\text{O}$  is produced, and it is  $\text{SiO}_2$ . 60-mol % and  $\text{Li}_2\text{O}$  20-mol % and  $\text{BaO}$  Produce the addition component powder which is mixed and carried out temporary quenching of the 20-mol %, and receive the principal component powder 100 weight section in these. Addition mixing was carried out at a rate of the 0.5 weight section, and the laminating ceramic capacitor was produced like the above-mentioned example. In addition, burning temperature was made into 1200-degree-C 1 hour. Although it had the dielectric characteristics which the specific inductive capacity of a dielectric layer is 13000, dielectric loss is 3.2%, and whose insulation resistance is  $1.2 \times 10^{10}$  ohms, and were excellent, in the elevated-temperature load test, short [ the capacitor which short-circuited first ], the time amount to \*\* is 5 hours, and it turned out that dependability is missing.

[0060] Moreover, the laminating ceramic capacitor using the dielectric porcelain indicated by JP,4-367559,A was produced. an empirical formula --  $1.005(\text{Ba}_{0.95}\text{Ca}_{0.05})\text{O}(\text{Ti}_{0.80}\text{Zr}_{0.200})_3 + 0.2\%$  of the weight  $\text{MnO}_2 + 0.3\%$  of the weight  $\text{SiO}_2 + 0.2\%$  of the weight  $\text{Y}_2\text{O}_3$  it becomes -- as  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{CaCO}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ , and  $\text{Y}_2\text{O}_3$  etc. -- powder was mixed, temporary quenching of this powder was carried out at 1200 degrees C, and the laminating ceramic capacitor was produced like the above-mentioned example using this temporary-quenching powder. In addition, burning temperature was made into 1100-degree-C 2 hours. Although it had the dielectric characteristics which the specific inductive capacity of a dielectric layer is 12000, dielectric loss is 2.5%, and whose insulation resistance is  $1.4 \times 10^{10}$  ohms, and were excellent, in the elevated-temperature load test, short [ the capacitor which short-circuited first ], the time amount to \*\* is 4 hours, and it turned out that dependability is missing.

[0061]

[Effect of the Invention] As mentioned above, since according to the dielectric porcelain of this invention the small porcelain of high specific inductive capacity, a high insulation resistance value, and dielectric loss is obtained even if it calcinates at 1050-1250 degrees C according to a reducing atmosphere, base metal, such as nickel, can be used for an internal electrode, and the laminating ceramic capacitor of low cost will be attained by this. And when lamination of the dielectric layer of a laminating ceramic capacitor is carried out, the poor dependability in an elevated-temperature load test can be reduced, and it can do that it is long lasting.

---

[Translation done.]

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-279353

(43)Date of publication of application : 20.10.1998

(51)Int.Cl.

C04B 35/49

H01G 4/12

(21)Application number : 09-079816

(71)Applicant : KYOCERA CORP

(22)Date of filing : 31.03.1997

(72)Inventor : HAMAYA TETSUZO  
KOIZUMI SEIICHI  
OTA HITOSHI

## (54) DIELECTRIC CERAMIC

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain dielectric ceramic having high reliability at high temp. and humidity by forming grains having a specified compsn. consisting of BaO, CaO, TiO<sub>2</sub> and ZrO<sub>2</sub> and a Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-contg. grain boundary phase.

SOLUTION: This dielectric ceramic consists of 100 pts.wt. grains having a compsn. represented by the formula  $[(Ba_{1-x}Ca_x)m(Ti_{1-y}Zr_y)]O_3$  (where  $0.01 \leq x \leq 0.1$ ,  $0.15 \leq y \leq 0.25$  and  $0.99 \leq m \leq 1.02$ ) and 0.2-3.0 pts.wt. grain boundary forming glass consisting of 2-50 mol% Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 20-88 mol% SiO<sub>2</sub> and 10-60 mol% Li<sub>2</sub>O or B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> or further contains 0.1-0.3 pt.wt. MnO<sub>2</sub>. It is obt'd. by mixing powder of a solid soln. represented by the formula  $[(Ba_{1-x}Ca_x)m(Ti_{1-y}Zr_y)]O_3$  with powder of the glass and firing the resultant mixture at 1,050-1,250° C for 0.5-5 hr in an atmosphere of nitrogen.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

30.03.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the  
examiner's decision of rejection or application  
converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of  
rejection][Date of requesting appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-279353

(43)公開日 平成10年(1998)10月20日

(51)Int.Cl.<sup>8</sup>

識別記号

F I

C 0 4 B 35/49

C 0 4 B 35/49

Z

H 0 1 G 4/12

3 5 8

H 0 1 G 4/12

3 5 8

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 8 頁)

(21)出願番号

特願平9-79816

(22)出願日

平成9年(1997)3月31日

(71)出願人 000006633

京セラ株式会社

京都府京都市山科区東野北井ノ上町5番地の22

(72)発明者 浜谷 徹三

鹿児島県国分市山下町1番1号 京セラ株式会社鹿児島国分工場内

(72)発明者 小泉 成一

鹿児島県国分市山下町1番4号 京セラ株式会社総合研究所内

(72)発明者 大小田 等

鹿児島県国分市山下町1番4号 京セラ株式会社総合研究所内

(54)【発明の名称】 誘電体磁器

(57)【要約】

【課題】Ni等の卑金属材料を内部電極としても、優れた誘電特性を有するとともに、高温負荷試験における信頼性を向上できる誘電体磁器を提供する。

【解決手段】組成式  $\{(\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x)_m(\text{Ti}_{1-y}\text{Zr}_y)\}\text{O}_3$  (但し、 $0.01 \leq x \leq 0.10$ 、 $0.15 \leq y \leq 0.25$ 、 $0.99 \leq m \leq 1.02$ ) で表される結晶粒子と、 $\text{Y}_2\text{O}_3$  を含有する粒界とからなるものである。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】組成式  $\{(Ba_{1-x}Ca_x)_m(Ti_{1-y}Zr_y)\}O_3$  (但し、 $0.01 \leq x \leq 0.10$ 、 $0.15 \leq y \leq 0.25$ 、 $0.99 \leq m \leq 1.02$ ) で表される結晶粒子と、 $Y_2O_3$  を含有する粒界相とからなることを特徴とする誘電体磁器。

【請求項2】組成式  $\{(Ba_{1-x}Ca_x)_m(Ti_{1-y}Zr_y)\}O_3$  (但し、 $0.01 \leq x \leq 0.10$ 、 $0.15 \leq y \leq 0.25$ 、 $0.99 \leq m \leq 1.02$ ) で表される主成分と、該主成分100重量部に対して、 $Y_2O_3$  と、 $SiO_2$  と、 $Li_2O$  または  $B_2O_3$  からなるガラス成分を0.2~3.0重量部含有するとともに、前記ガラス成分が、 $Y_2O_3$  と、 $SiO_2$  と、 $Li_2O$  または  $B_2O_3$  の3成分組成において、 $Y_2O_3$  が2~50モル%、 $SiO_2$  が20~88モル%、 $Li_2O$  または  $B_2O_3$  が10~60モル%からなることを特徴とする請求項1記載の誘電体磁器。

【請求項3】主成分100重量部に対して、さらに  $MnO_2$  を0.1~0.3重量部含有することを特徴とする請求項2記載の誘電体磁器。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は誘電体磁器に関するものであり、特に、内部電極に卑金属材料、例えばNi等を用いることができる積層型コンデンサの誘電体磁器に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】従来、積層型コンデンサは、所定の誘電体磁器組成物からなるグリーンシートに導電ペーストを印刷し、該導電ペーストを印刷した複数枚のグリーンシートを積層し、グリーンシートと内部電極とを一体的に焼成し、形成されている。

【0003】そして、従来、卑金属を内部電極として用いることができる非還元性誘電体磁器組成物として、例えば、特公昭57-42588号公報に開示されるようなものが知られている。この公報に開示される誘電体磁器組成物は、組成式  $[(Ba_{1-x-y}Ca_xSr_y)O]_mTiO_2$  で表されるものである。

【0004】しかしながら、特公昭57-42588号に開示された誘電体磁器組成物では、焼成時に発生する誘電体材料の還元反応を抑えることができるものの、焼成温度が1300℃を越えてしまい、積層型コンデンサの内部電極にNiを用いた場合、Ni粒子が凝集反応を示し、安定した電極形成が困難であった。また、同時にNi粒子が誘電体磁器に拡散反応を示し、絶縁抵抗値を劣化させるという問題点があった。そこで、近年、低温焼成が可能な誘電体磁器組成物として、特公平6-14496号および特開平4-367559号公報に開示されるようなものが知られている。

【0005】特公平6-14496号には、 $\{(Ba$  50

$_{1-x}Ca_x)O\}_m(Ti_{1-y-z}Zr_yR_z)O_{2-z/2}$  (RはY等の希土類元素) で表される基本成分と、 $SiO_2$ 、 $Li_2O$  およびMO (MOはBaO等) からなる添加成分との混合物を焼成してなるものが開示されている。この公報には、基本成分を1200℃で仮焼し、添加成分を1000℃で仮焼し、基本成分と添加成分の仮焼粉末を混合し、この混合粉末でスラリーを形成し、所定形状に成形し、1150℃で焼成することにより焼結体が得られている。

10 【0006】また、特開平4-367559号公報には、 $(Ba_{1-x}Ca_x)_m(Ti_{1-y}Zr_y)_nO_3 + aM_1 + bM_2 + cM_3$  ( $M_1$  はMn等の化合物、 $M_2$  はSiの化合物、 $M_3$  はYの化合物) で表されている誘電体磁器組成物が開示されている。この公報には、 $BaCO_3$ 、 $CaCO_3$ 、 $TiO_2$ 、 $ZrO_2$ 、 $SiO_2$ 、 $Y_2O_3$  等の粉末を混合し、この粉末を1050~1240℃で仮焼し、この仮焼粉末を用いて成形体を作製し、800~1100℃で焼成することにより焼結体が得られている。

20 【0007】これらの誘電体磁器組成物では、還元性雰囲気で焼成しても磁器が還元されず、焼成温度を1150℃以下とすることができ、低温焼成が可能である。

## 【0008】

【発明が解決しようする課題】しかしながら、上記した誘電体磁器は、高温高湿中における信頼性が低いという問題があった。即ち、近年においては小型高容量化が要求されているが、このために積層型磁器コンデンサにおける誘電体層を薄層化すると絶縁抵抗の低下等により信頼性不良が多発するという問題があった。

30 【0009】本発明は上述の課題に鑑みて案出されたものであり、その目的は還元雰囲気にて1250℃以下で焼成でき、しかも比誘電率、誘電損失、絶縁抵抗値等の基本的な特性にも優れるとともに、高温高湿中における信頼性を向上し、長寿命とすることができる誘電体磁器を提供することを目的とする。

## 【0010】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、上記問題点について鋭意検討した結果、特公平6-14496号および特開平4-367559号公報のように、添加される希土類元素を結晶相中に固溶させるのではなく、主に粒界に存在させることにより、積層型磁器コンデンサの誘電体層を薄層化した場合において、高温高湿中における信頼性を向上できることを知見し、本発明に至った。

【0011】即ち、本発明の誘電体磁器は、組成式  $\{(Ba_{1-x}Ca_x)_m(Ti_{1-y}Zr_y)\}O_3$  (但し、 $0.01 \leq x \leq 0.10$ 、 $0.15 \leq y \leq 0.25$ 、 $0.99 \leq m \leq 1.02$ ) で表される結晶粒子と、 $Y_2O_3$  を含有する粒界相とからなるものである。

【0012】本発明の誘電体磁器は、組成式  $\{(Ba$

$(1-x)Ca_x)_m(Ti_{1-y}Zr_y))O_3$  (但し、 $0.01 \leq x \leq 0.10$ 、 $0.15 \leq y \leq 0.25$ 、 $0.99 \leq m \leq 1.02$ ) で表される主成分と、該主成分100重量部に対して、 $Y_2O_3$  と、 $SiO_2$  と、 $Li_2O$  または  $B_2O_3$  からなるガラス成分を0.2~3.0重量部含有するとともに、前記ガラス成分が、 $Y_2O_3$  と、 $SiO_2$  と、 $Li_2O$  または  $B_2O_3$  の3成分組成において、 $Y_2O_3$  が2~50モル%、 $SiO_2$  が20~88モル%、 $Li_2O$  または  $B_2O_3$  が10~60モル%からなることが望ましい。また、主成分100重量部に対して、さらに  $MnO_2$  を0.1~0.3重量部含有することが望ましい。

## 【0013】

【作用】本発明の誘電体磁器では、積層磁器コンデンサの内部電極に卑金属、例えばNiやNiを主成分とする合金等を用いても、低温で焼成処理されることからNi粒子が凝集反応を示したり、Ni粒子が誘電体中に拡散反応を示したりすることがなく、誘電率、誘電損失、絶縁抵抗値等の基本的な特性に優れた積層磁器コンデンサを作製することができる。

【0014】そして、上記したように、特公平6-14496号では、 $\{(Ba_{1-x}Ca_x)O)_m(Ti_{1-y-z}Zr_yR_z)O_{2-z/2}$  (RはY等の希土類元素) からなる基本成分を1200℃で仮焼し、 $SiO_2$ 、 $Li_2O$  およびMO (MOはBaO等) からなる添加成分を1000℃で仮焼し、基本成分と添加成分の仮焼粉末を混合し、この混合粉末でスラリーを形成し、所定形状に成形し、1150℃で焼成することにより焼結体を作製していたため、Yが主結晶中に固溶していると考えられ、誘電特性は良好であるものの、薄層コンデンサを作製した場合の高温負荷試験での信頼性不良が発生し易い。

【0015】また、特開平4-367559号公報でも同様に、 $BaCO_3$ 、 $CaCO_3$ 、 $TiO_2$ 、 $ZrO_2$ 、 $SiO_2$ 、 $Y_2O_3$  等の粉末を混合し、この粉末を1050~1240℃で仮焼していたため、Yが主結晶中に固溶していると考えられ、上記したように信頼性不良が発生し易い。

【0016】本発明者等は、誘電特性を向上するために添加するYを、主結晶相の粒界に主にガラスとして存在せしめることにより、誘電特性を向上できるとともに、薄層化した場合の高温負荷試験での信頼性不良を低減することができ、長寿命とできることを知見し、本発明に至った。

【0017】本発明では、Yを主に粒界に存在せしめるため、例えば、 $SiO_2$ 、 $Li_2CO_3$  および  $Y_2O_3$  粉末を混合し、これを1200~1400℃で溶融し、この溶融物を冷水中に投入してガラスカレットを作製し、このガラスカレットを粉砕してガラス成分として用いた。このようなガラス成分と主成分とを混合し、12

50℃以下の温度で焼成して誘電体磁器を作製すると、Yが粒界に主にガラスとして存在する誘電体磁器が得られる。本発明では、このようにYが主に粒界に存在することにより、薄層化した場合においても信頼性が向上し、長寿命化を図れるのである。

## 【0018】

【発明の実施の形態】本発明の誘電体磁器は、組成式  $\{(Ba_{1-x}Ca_x)_m(Ti_{1-y}Zr_y))O_3$  (但し、 $0.01 \leq x \leq 0.10$ 、 $0.15 \leq y \leq 0.25$ 、 $0.99 \leq m \leq 1.02$ ) で表される結晶粒子と、少なくとも  $Y_2O_3$  を含有する粒界とからなるものである。

【0019】ここで、結晶粒子は、組成式  $\{(Ba_{1-x}Ca_x)_m(Ti_{1-y}Zr_y))O_3$  (但し、 $0.01 \leq x \leq 0.10$ 、 $0.15 \leq y \leq 0.25$ 、 $0.99 \leq m \leq 1.02$ ) と表されるものである。

【0020】この組成式において、xはCa原子数を表すが、このCaは主に温度特性を平坦化するディプレッサーとして作用するとともに、絶縁抵抗値を向上させる元素として作用するものである。xが0.01未満になると絶縁抵抗値が  $1 \times 10^9 \Omega$  を下回ることになり、また、xが0.10を越えると比誘電率が8000を下回り、いずれの場合でも積層磁器コンデンサとしての基本特性を満足することができない。従って、xの値は、 $0.01 \leq x \leq 0.10$  の範囲が望ましい。

【0021】前記組成式において、yはZrの原子数を表すが、このZrは主にキュリー点を低温側に移動させるシフターとして作用するものである。yが0.15未満となると誘電損失が5.0%を越えてしまい、また、yが0.25を越えると比誘電率が8000を下回り、いずれの場合でも積層磁器コンデンサとしての基本特性を満足することができない。従って、yの値は  $0.15 \leq y \leq 0.25$  の範囲が望ましい。

【0022】前記組成式において、mが0.99未満になると絶縁抵抗値が  $1 \times 10^9 \Omega$  未満となってしまう、また、mが1.02を越えると焼結性が低下し、緻密な焼結体を得られない。従って、mは  $0.99 \leq m \leq 1.02$  の範囲が好ましい。

【0023】そして、本発明の誘電体磁器は、上記組成式で表される結晶粒子と、Yを含有する粒界とからなるものである。従来の誘電体磁器と異なる点は、Yが粒界に存在する点にある。このように、 $Y_2O_3$  が粒界に存在することにより、主結晶相の誘電特性を劣化させることなく、薄層化した場合の信頼性不良を低減することができ、長寿命とできるのである。

【0024】本発明の誘電体磁器の組成は、上記した組成式  $\{(Ba_{1-x}Ca_x)_m(Ti_{1-y}Zr_y))O_3$  (但し、 $0.01 \leq x \leq 0.10$ 、 $0.15 \leq y \leq 0.25$ 、 $0.99 \leq m \leq 1.02$ ) で表される主成分と、該主成分100重量部に対して、 $SiO_2$ 、 $Y_2O_3$ 、

$\text{Li}_2\text{O}$ または $\text{B}_2\text{O}_3$ からなるガラス成分を0.2～3.0重量部含有するとともに、ガラス成分が、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ または $\text{B}_2\text{O}_3$ の3成分組成において、 $\text{SiO}_2$ が20～88モル%、 $\text{Li}_2\text{O}$ または $\text{B}_2\text{O}_3$ が10～60モル%、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ が2～50モル%からなるものである。

【0025】ここで、主成分100重量部に対して、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ または $\text{B}_2\text{O}_3$ を含むガラス成分を0.2～3.0重量%添加しているのは、ガラス成分が0.2重量%未満となると焼結性が低下し、緻密な焼結体が得られない。また、3.0重量%を越えると絶縁抵抗値が $1 \times 10^9 \Omega$ を下回ることになり、積層磁器コンデンサとしての基本特性を満足することができない。

【0026】このガラス成分は、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ または $\text{B}_2\text{O}_3$ 、および $\text{Y}_2\text{O}_3$ の3成分組成において、 $\text{SiO}_2$ が20～88モル%、 $\text{Li}_2\text{O}$ または $\text{B}_2\text{O}_3$ が10～60モル%、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ が2～50モル%からなるものである。 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ または $\text{B}_2\text{O}_3$ 、および $\text{Y}_2\text{O}_3$ の量が、上記範囲を外れると電気特性、焼結性が低下してしまう。

【0027】更に、主成分100重量部に対して、 $\text{MnO}_2$ を0.1～0.3重量部含有することが望ましい。これは、 $\text{Mn}$ は焼結性、絶縁抵抗値を向上させる作用があり、0.1重量部未満では焼結性向上効果が小さく、また、0.3重量部を越えると比誘電率が低下し、積層磁器コンデンサとしての基本特性を満足することができないからである。

【0028】本発明の誘電体磁器は以下のようにして作製される。まず、主成分粉末として、組成式 $\{(\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x)_m(\text{Ti}_{1-y}\text{Zr}_y)\}_n\text{O}_3$ （但し、 $0.01 \leq x \leq 0.10$ 、 $0.15 \leq y \leq 0.25$ 、 $0.99 \leq m \leq 1.02$ ）で表される固溶体粉末を作製する。この固溶体粉末は、固相法または湿式合成法のどちらの製法を用いても同様の特性が得られる。

【0029】また、ガラス成分粉末を、例えば、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Li}_2\text{CO}_3$ または $\text{B}_2\text{O}_3$ 、および $\text{Y}_2\text{O}_3$ 粉末を上記した組成となるように混合し、これを1200～1400℃で溶融し、この溶融物を冷水中に投入してガラスカレットを作製し、このガラスカレットを粉砕して作製する。

【0030】そして、ガラス成分粉末を、主成分粉末100重量部に対して0.2～3.0重量部添加して混合し、窒素雰囲気、または還元雰囲気中において1050～1250℃の温度で0.5～5時間焼成することにより、本発明の誘電体磁器が得られる。このように、主成分粉末とは別に、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ をガラス成分として添加せしめることにより、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ が主にガラスとして粒界に存在することになり、薄層化した場合においても信頼性が向上し、長寿命化を図れるのである。

【0031】尚、 $\text{SiO}_2$ はガラスとして粒界に存在するものであり、結晶粒子中の $\text{Ba}$ 、 $\text{Ca}$ の一部が粒界にガラスとして存在する場合がある。また、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SiO}_2$ は粒界に結晶相として析出する場合もあり、 $\text{MnO}_2$ は粒界に存在する。

【0032】本発明の誘電体磁器を用いた積層型磁器コンデンサは、誘電体磁器からなる誘電体層、及び内部電極とが交互に積層してなるコンデンサ本体と、このコンデンサ本体の両端部に形成された第1の端子電極、および第2の端子電極とから構成されている。

【0033】内部電極は、隣接する内部電極が交互に前記対向する端面に導出し、第1の端子電極、又は第2の端子電極に接続されて構成されている。この内部電極は、卑金属の $\text{Ni}$ を主成分とした材料からなる。

【0034】このような積層型磁器コンデンサは、上記した主成分粉末とガラス成分粉末とを所定量添加し、さらに所望により $\text{MnO}_2$ 粉末を添加し、ボールミルで湿式粉砕して有機ビニルを加え、均質混合を行い、ドクタブレード法によってテープ成形を行う。その後、テープを所定大きさに裁断し、グリーンシートとする。

【0035】次に、 $\text{Ni}$ 粉末、有機ビニルとを均質混合した導電性ペーストをスクリーン印刷で、上記グリーンシート上に内部電極となる導体膜を形成する。

【0036】このように、内部電極となる導体膜が形成されたグリーンシートを内部電極導出方向を考慮して、積層し、圧着して一体化する。

【0037】そして、グリーンシート積層体を切断し、個々に切断した未焼成のグリーンチップを還元性雰囲気中で1050～1250℃で焼成し、外部電極用のペーストとして、 $\text{Cu}$ ペーストを塗布し、窒素雰囲気中で800～900℃で焼き付け、外部電極を形成した。

【0038】上述の積層型磁器コンデンサは、内部電極に $\text{Ni}$ 等の卑金属材料を用いた場合、特に焼成温度が1250℃以下と $\text{Ni}$ 粒子の凝集反応を抑え、しかも緻密な焼結体が得られ、 $\text{Ni}$ 粒子が誘電体磁器中に拡散することを抑え、 $\text{Ni}$ 内部電極を安定に形成できるとともに、積層型磁器コンデンサの電気的な特性を満足し、さらに高温負荷試験においても信頼性を向上することができる。

【0039】

【実施例】出発原料として、 $\text{BaCO}_3$ 、 $\text{CaCO}_3$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{ZrO}_2$ 粉末を、表1に示す組成となるように秤量し、 $\text{ZrO}_2$ ボールを用いたボールミルで湿式処理し、乾燥後、大気中で1200℃で2時間仮焼処理し、更に湿式粉砕、乾燥し、主成分粉末を作製した。

【0040】次にガラス成分として $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Li}_2\text{CO}_3$ または $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ を表1のガラス組成となるように所定量秤量し、1時間乾式混合した。その後、白金ルツボに混合粉をいれ、大気中で1300℃で溶融させ、冷水に流し出し、ガラスカレットとした。このカ

レットにイソプロピルアルコール (IPA) を加え、上記ボールミルで湿式粉碎し、乾燥し、ガラス成分粉末を作製した。

【0041】その後、表1に示すように、ガラス成分粉末を主成分粉末100重量部に対して表1に示す量だけ添加し、 $MnO_2$  粉末を表1に示す量だけ添加し、上記ボールミルで湿式粉碎して有機ビヒクルを加え、ドクターブレード法によって15  $\mu m$ の厚みになるようテープ成型を行い、その後、テープを所定大きさに裁断し、グリーンシートを作製した。

【0042】内部電極を形成する導電性ペーストを、Ni粉末と有機ビヒクルとを均質混合して作製し、この導電性ペーストをスクリーン印刷で上記グリーンシート上に塗布する。

【0043】導電性ペーストが塗布されたグリーンシートを11枚を積層し、この積層体の上下に導電性ペーストが塗布されていない上記グリーンシートをそれぞれ10枚ずつ積層し、圧着して一体化してグリーンシート積層体を作製した後、これを切断し、個々に切断した未焼成のグリーンチップを還元性雰囲気中で表2に示す温度で2時間焼成した。

【0044】この後、外部電極用のペーストとして、Cu粉末と有機ビヒクルを均質混合して作製し、このペーストを塗布し、窒素雰囲気中で900℃で焼き付け、外部電極を形成し、積層型コンデンサを作製した。

【0045】作製された積層型コンデンサは、誘電体層の厚みが10  $\mu m$ 、有効誘電体層は10層、内部電極の有効電極面積は3.0  $mm^2$ であった。

【0046】この積層型コンデンサの特性を、基準温度25℃でデジタルLCRメータ (YHP製4274A) にて周波数1 KHz、測定電圧1.0 V rmsの信号を入力し、静電容量、誘電損失tan  $\delta$ を測定した。誘電体磁器の比誘電率 $\epsilon_r$ は積層型コンデンサの誘電体磁器の試料寸法と静電容量を考慮して算出した。尚、絶縁抵抗値は、積層型磁器コンデンサに16 Vの直流電圧を1分間印可し、その値とした。

10 【0047】評価として、比誘電率 $\epsilon_r$ は小型で高誘電率のコンデンサを作成するために重要な特性であり、8000を越えるものを良好とした。誘電損失tan  $\delta$ は誘電体グリーンシートの薄膜化を実現し、小型で高誘電率のコンデンサを作成するために重要な特性であり、5.0%以下を良好とした。絶縁抵抗値は $1 \times 10^9 \Omega$ 以上を良好とした。また、これらの特性値は磁器コンデンサのn=10個を平均した値とした。

20 【0048】また、積層型コンデンサの高温負荷寿命を、150℃で64 Vの直流電圧の印加状態に保持することにより測定した。この高温負荷寿命は、300個の積層型コンデンサについて行い、最初にショートしたコンデンサの、印加開始からショートに至るまでの時間を測定することにより評価した。高温負荷寿命は、誘電体層を薄層化する際に特に重要となるものであり、印加開始からショートに至るまでの時間が50時間以上を良品とした。これらの結果を表2に記載した。

【0049】

【表1】



試料 No.	主成分			ガラス成分(mol%)				MnO <sub>2</sub> 重量 部
	x	y	z	添加量 重量部	SiO <sub>2</sub>	Li <sub>2</sub> O B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
* 1	0.05	0.20	0.980	1.0	60	Li 20	20	0.20
2	0.05	0.20	0.990	1.0	60	Li 20	20	0.20
3	0.05	0.20	1.000	1.0	60	Li 20	20	0.20
4	0.05	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
5	0.05	0.20	1.020	1.0	60	Li 20	20	0.20
* 6	0.05	0.20	1.030	1.0	60	Li 20	20	0.20
* 7	0	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
8	0.01	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
9	0.03	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
10	0.08	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
11	0.10	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
*12	0.12	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
*13	0.05	0.125	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
14	0.05	0.160	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
15	0.05	0.175	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
16	0.05	0.225	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
17	0.05	0.250	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
*18	0.05	0.275	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.20
19	0.05	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.10
20	0.05	0.20	1.010	1.0	60	Li 20	20	0.30
21	0.05	0.20	1.010	0.2	60	Li 20	20	0.20
22	0.05	0.20	1.010	0.5	60	Li 20	20	0.20
23	0.05	0.20	1.010	2.0	60	Li 20	20	0.20
24	0.05	0.20	1.010	3.0	60	Li 20	20	0.20
*25	0.05	0.20	1.010	1.0	100	Li 0	0	0.20
*26	0.05	0.20	1.010	1.0	90	Li 10	0	0.20
*27	0.05	0.20	1.010	1.0	40	Li 60	0	0.20
28	0.05	0.20	1.010	1.0	38	Li 50	2	0.20
29	0.05	0.20	1.010	1.0	40	Li 40	20	0.20
30	0.05	0.20	1.010	1.0	20	Li 60	20	0.20
31	0.05	0.20	1.010	1.0	50	Li 10	30	0.20
32	0.05	0.20	1.010	1.0	40	Li 10	50	0.20
33	0.05	0.20	1.010	1.0	20	Li 30	50	0.20
34	0.05	0.20	1.010	1.0	88	Li 10	2	0.20
35	0.05	0.20	1.010	1.0	60	B 20	20	0.20
36	0.05	0.20	1.010	1.0	40	B 40	20	0.20
37	0.05	0.20	1.010	1.0	20	B 60	20	0.20

\*印は本発明の範囲外の試料を示す。

【0050】

【表2】

試料 No	焼成温度 ℃	比誘電率	誘電損失 %	絶縁抵抗 $\times 10^9 \Omega$	高温Q値試験 (時間)
○ 1	1150	19200	7.3	<1.0	—
2	1150	15800	4.3	2.8	68
3	1200	14200	3.5	5.1	76
4	1200	13800	3.2	8.6	82
5	1250	10500	1.8	8.8	57
○ 6	1250	緻密な焼結体が得られず			
○ 7	1150	18800	2.8	<1.0	—
8	1150	17500	3.1	2.6	77
9	1200	15300	2.9	3.1	66
10	1200	12600	3.5	9.1	124
11	1250	9200	3.7	11.3	108
○ 12	1250	7600	4.1	12.1	—
○ 13	1200	12700	6.5	8.6	—
14	1200	14800	4.5	7.5	75
15	1200	11200	3.9	8.2	92
16	1200	10200	2.1	7.8	81
17	1250	8200	1.6	8.6	63
○ 18	1250	8700	1.2	8.5	—
19	1200	15800	4.1	8.5	52
20	1200	10500	2.1	5.2	91
21	1250	8700	2.8	12.3	176
22	1200	14700	3.3	9.8	148
23	1200	10500	4.3	5.1	66
24	1150	8800	4.8	2.3	51
○ 25	1150	13000	7.8	<1.0	—
○ 26	1200	14500	7.5	<1.0	—
○ 27	1250	7700	4.3	2.1	—
28	1200	8800	4.3	3.7	57
29	1200	14500	3.4	7.1	61
30	1250	10200	2.9	7.3	52
31	1200	11500	3.5	6.8	92
32	1250	9600	2.8	4.3	82
33	1200	8800	3.1	4.8	97
34	1200	13800	4.1	4.7	76
35	1200	14500	3.1	8.1	157
36	1200	13200	3.2	7.6	121
37	1200	8400	2.8	6.1	81

○印は本発明の範囲外の試料を示す。

【0051】本発明の試料について、透過電子顕微鏡（TEM）にて組織を5万倍で観察したところ、結晶粒子と粒界とからなり、結晶粒子と粒界について元素分析を行ったところ、結晶粒子にはBa、Ca、Ti、Zrを検出し、粒界にはY、Mn、Siを検出した。

【0052】試料番号1～6で、基本成分中のm値の範囲の作用が理解できる。試料番号1のようにmが0.98の場合、絶縁抵抗値が $1 \times 10^9$ 未満となってしまう。また、試料番号6のようにmが1.03の場合には1250℃で焼成しても緻密な焼結体が得られない。このことから、mの値は、 $0.99 \leq m \leq 1.02$ の範囲となる。

【0053】次に試料番号7～12で複合酸化物のx値の範囲の作用が理解できる。試料番号7に示すようにxが0の場合、絶縁抵抗値が $1 \times 10^9$ 未満となってしまう。

【0054】また、試料番号12のようにxの値が0.1を越えると、比誘電率が7600と8000を下回ってしまう。このことから、xの値は、 $0.01 \leq x \leq 0.10$ となる。

【0055】次に試料番号13～18で複合酸化物のy値の範囲の作用が理解できる。試料番号13に示すようにyが0.125の場合、誘電損失が6.5%となってしまう。また、試料番号18のようにyが0.275の場合、比誘電率が6700と8000を下回ってしまう。このことから、yの値は、 $0.15 \leq y \leq 0.25$ の範囲となる。

【0056】次に試料番号21～24でガラス成分の添加量の範囲の作用が理解できる。添加量が0.2～3.0重量%に制御することにより、緻密な焼結体が得られ、その他の特性も安定するものとなる。ガラス成分を構成する $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ または $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ のモル%について試料番号25～37でその作用が理解できる。

【0057】以上のように、実施例から、1250℃以下で焼成可能で、比誘電率が8000以上、誘電損失が5.0%以下、絶縁抵抗値が $1 \times 10^9$ 以上の誘電体磁器組成物とするためには、上述のように、基本成分のx、y、m、ガラス成分の $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ または $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ のモル%、そのガラス成分の重量%、

更に $\text{MnO}_2$ の重量%を厳密に制御して達成されることになる。

【0058】そして、本発明の試料では、 $150^\circ\text{C}$ で64Vの直流電圧の印加状態に保持する高温負荷寿命において、最初にショートしたコンデンサの、印加開始からショートに至るまでの時間が50時間以上と優れた特性を示した。

【0059】尚、本願発明者等は、特公平6-14496号公報に開示された誘電体磁器を用いた積層磁器コンデンサを作製した。即ち、 $(\text{Ba}_{0.95}\text{Ca}_{0.05})\text{O}$  10  
 $1.005(\text{Ti}_{0.800}\text{Zr}_{0.196}\text{Y}_{0.004})\text{O}$ で表される仮焼  
 粉末からなる主成分粉末を作製し、 $\text{SiO}_2$  60モル  
 %、 $\text{Li}_2\text{O}$  20モル%および $\text{BaO}$  20モル%を  
 混合し仮焼した添加成分粉末を作製し、これらを主成分  
 粉末100重量部に対して0.5重量部の割合で添加混  
 合し、上記実施例と同様にして積層磁器コンデンサを作  
 製した。尚、焼成温度は $1200^\circ\text{C}$ 1時間とした。誘電  
 体層の比誘電率は13000であり、誘電損失は3.2  
 %であり、絶縁抵抗は $1.2 \times 10^{10}\Omega$ であり優れた誘  
 電特性を有していたが、高温負荷試験において、最初  
 ショートしたコンデンサのショートに至までの時間は5  
 20 時間であり、信頼性に欠けることが判った。

【0060】また、特開平4-367559号公報に開  
 示された誘電体磁器を用いた積層磁器コンデンサを作製

した。組成式が、 $(\text{Ba}_{0.95}\text{Ca}_{0.05})_{1.005}(\text{Ti}_{0.80}\text{Zr}_{0.200})\text{O}_3 + 0.2\text{重量}\%\text{MnO}_2 + 0.3\text{重量}\%\text{SiO}_2 + 0.2\text{重量}\%\text{Y}_2\text{O}_3$ となるように、 $\text{BaCO}_3$ 、 $\text{CaCO}_3$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 等の粉末を混合し、この粉末を $1200^\circ\text{C}$ で仮焼し、この仮焼粉末を用いて、上記実施例と同様にして積層磁器コンデンサを作製した。尚、焼成温度は $1100^\circ\text{C}$ 2時間とした。誘電体層の比誘電率は12000であり、誘電損失は2.5%であり、絶縁抵抗は $1.4 \times 10^{10}\Omega$ であり優れた誘電特性を有していたが、高温負荷試験において、最初にショートしたコンデンサのショートに至までの時間は4時間であり、信頼性に欠けることが判った。

【0061】

【発明の効果】以上のように、本発明の誘電体磁器によれば、還元性雰囲気で $1050 \sim 1250^\circ\text{C}$ で焼成しても、高い比誘電率、高い絶縁抵抗値、誘電損失の小さい磁器が得られるため、内部電極にNi等の卑金属を用いることができ、これによって低コストの積層磁器コンデンサが達成されることになる。そして、積層磁器コンデンサの誘電体層を薄層化した場合において、高温負荷試験における信頼性不良を低減することができ、長寿命とできる。